



(19)

(11) Publication number: **04311591 A**

Generated Document.

PATENT ABSTRACTS OF JAPAN(21) Application number: **03103840**(51) Intl. Cl.: **C25D 5/08 C25D 17/00 H01L 21/288**(22) Application date: **08.04.91**

(30) Priority:

(43) Date of application
publication: **04.11.92**(84) Designated contracting
states:(71) Applicant: **SUMITOMO METAL IND LTD**(72) Inventor: **KAMIMURA HIROHIKO**

(74) Representative:

**(54) DEVICE AND METHOD
FOR PLATING**

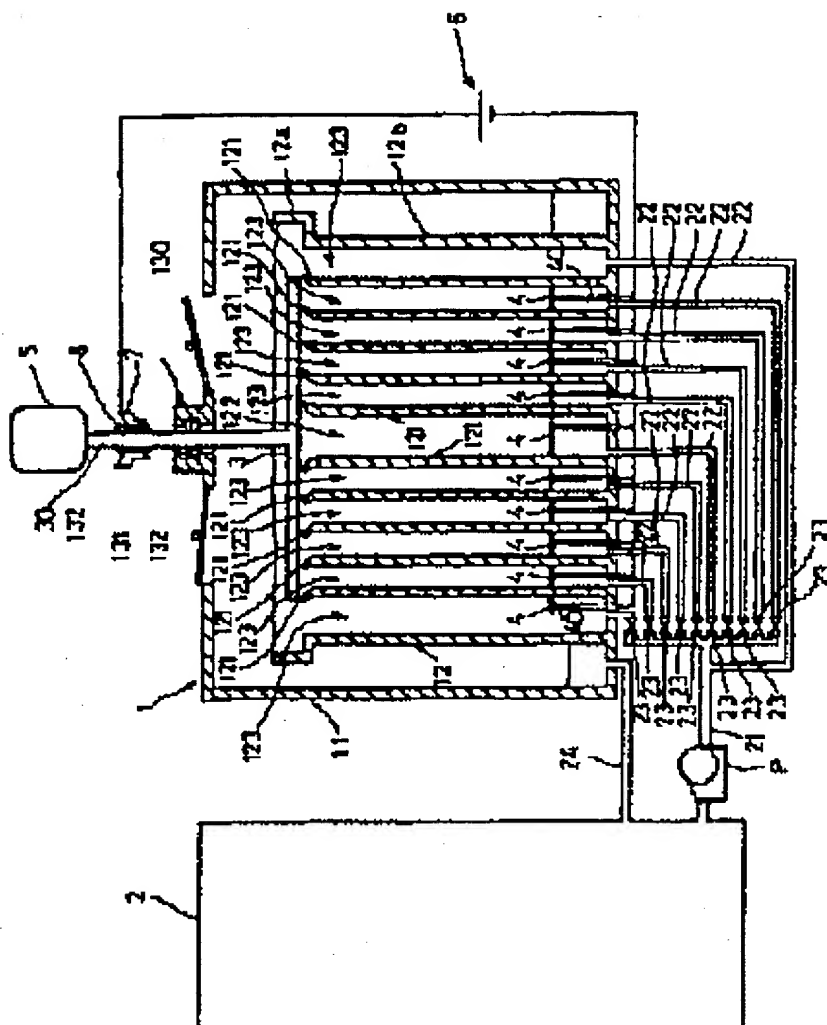
(57) Abstract:

PURPOSE: To obtain a plating film precisely uniform in film quality, composition and film thickness on a wafer by controlling the change in characteristics such as conc. of a plating solution which flows along a cathode electrode in plating using a rotary cathode electrode.

CONSTITUTION: The disk type rotary electrode 3 rotating to circumferential direction, on one side of which a sample is fitted, and the anodic electrode 4, 4... provided against the described one side are arranged in a plating solution, and electroplating is executed by energizing between these electrodes. The inner vessel 12, inside of which the plural cylindrical inner wall 121, 121... is provided, is provided on axial line of the rotary shaft 30 of the rotary electrode 3 and the plating solution is supplied from the columnary space 122 in the inner

vessel 12 and cylindrical space 123, 123... respectively to the rotary electrode 3. And the supplying amount of the plating solution supplied from each of the columnary space 122 and the cylindrical space 123, 123... is regulated to increase from the inside towards the outside of the inner vessel 12.

COPYRIGHT: (C)1992,JPO&Japio



(19) 日本国特許庁 (J P)

(12) 公開特許公報 (A)

(11) 特許出願公開番号

特開平4-311591

(43) 公開日 平成4年(1992)11月4日

(51) Int.Cl. ⁵	識別記号	庁内整理番号	F I	技術表示箇所
C 2 5 D 5/08		6919-4K		
17/00	J	7179-4K		
H 0 1 L 21/288	E	7738-4M		

審査請求 未請求 請求項の数4(全 6 頁)

(21) 出願番号 特願平3-103840

(22) 出願日 平成3年(1991)4月8日

(71) 出願人 000002118

住友金属工業株式会社

大阪府大阪市中央区北浜4丁目5番33号

(72) 発明者 上村 裕彦

大阪府大阪市中央区北浜4丁目5番33号

住友金属工業株式会社内

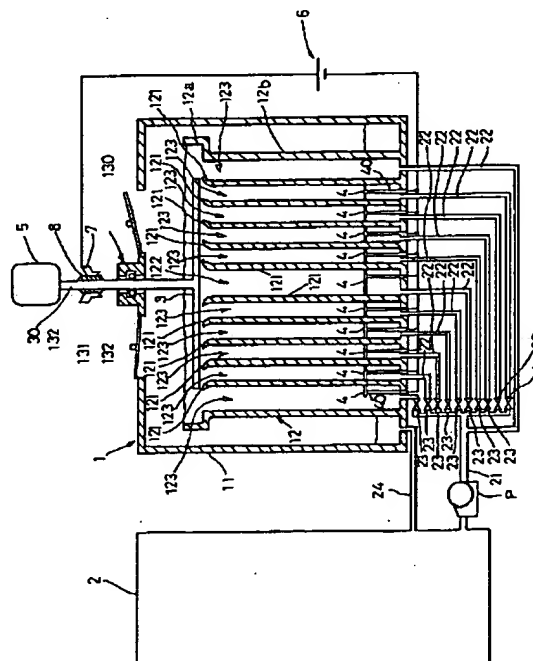
(74) 代理人 弁理士 河野 登夫

(54) 【発明の名称】 めっき装置及びめっき方法

(57) 【要約】

【目的】 回転式のカソード電極を用いてめっきを行う場合に、カソード電極に沿って流れるめっき液の温度等の特性の変化を抑制することにより、ウェハ上に膜質、組成及び膜厚が精密に均一なめっき膜を得ることを可能とする。

【構成】 その一面に試料を装着し、周方向に回転する円盤状の回転電極3と、前記一面と対向配置されたアノード電極4、4…とをめっき液中に配し、これらの間に通電することによって電気めっきを行うめっき装置であり、回転電極3の回転軸30の軸線上に、複数の円筒状の内壁121、121、…をその内部に設けた内槽12を備え、内槽12内の円柱状空間122 及び円筒状空間123、123、…の夫々からめっき液を回転電極3に供給するようにしてある。そして、円柱状空間122 及び円筒状空間123、123、…の夫々から供給されるめっき液の供給量は、内槽12の内側から外側に向かうに従って多くしている。



1

【特許請求の範囲】

【請求項1】 その一面に試料を装着して周方向に回転する円盤状のカソード電極と、前記一面と対向配置されたアノード電極とをめっき液中に配し、カソード電極とアノード電極との間に通電することにより電気めっきを行うめっき装置において、前記カソード電極の回転軸線上に配され、その内部に複数の円筒状の内壁を同軸的に設けた筒体を備え、該筒体内の空間の夫々からめっき液をカソード電極の前記一面に供給するようにしてあることを特徴とするめっき装置。

【請求項2】 その一面に試料を装着して周方向に回転する円盤状のカソード電極と、前記一面と対向配置されたアノード電極とをめっき液中に配し、カソード電極とアノード電極との間に通電することにより電気めっきを行うめっき装置において、その内部に樋形状の内壁を同軸的に複数設けた扇状断面の筒を前記カソード電極の回転軸線の回りに連設し、隣合う筒の前記内壁の径を異ならせてある筒体を備え、該筒体内の空間の夫々からめっき液を前記カソード電極の一面に供給するようにしてあることを特徴とするめっき装置。

【請求項3】 請求項1記載のめっき装置を用いてめっきを行う方法であって、筒体内の空間のめっき液の供給量を、筒体内の内側から外側に向かうに従って多くすることを特徴とするめっき方法。

【請求項4】 請求項2記載のめっき装置を用いてめっきを行う方法であって、筒体内の空間のめっき液の供給量を、筒体内の内側から外側に向かうに従って多くすることを特徴とするめっき方法。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【産業上の利用分野】 本発明は、カソード電極とアノード電極とをめっき液中に配し、電気めっきを行うめっき装置に関する。

【0002】

【従来の技術】 電気めっきは、磁気装置及び薄膜の電気素子の製造に永年使われている。ウェハ上に電気めっきによる精密めっきを施す場合、めっき液の攪拌、温度、電流密度、及びpHを精密に制御する必要がある。特に、合金等をめっきし、これを機能性膜として使用する場合には、膜の組成等がその特性に大きく影響するため、めっき条件の変動に対して敏感に組成が変動するめっき浴では、めっき条件を変動させないために、より精密な制御を行うことが必要とされる。例えば、薄膜磁気ヘッド等に用いるNiFe合金めっきは、異常共析型に属し、Niに比べてFeが析出し易く、めっき条件の変動に対して敏感にその組成が変動する。

【0003】 めっき条件の中で、その変動を防ぐことが特に困難であるのは、再現性良くウェハ表面上にめっき液の均一な流れを作るという条件である。この条件を実現するための装置としては、めっき槽の中心部にて、均

2

一な速度で前後運動をするバドル式の攪拌器を備え、該攪拌器の往復運動によってウェハを装着したカソード基板上にめっき液の層状の流れを作るようにしたバドル式往復運動攪拌めっき装置が提案されている（米国特許4102756号）。また、その他には、めっき液の流れを与えるように固定された2つの壁材によって限定された流路を形成し、その流路の下方から上方へめっき液を通流させて流路の上端からめっき液をオーバーフローさせ、ウェハを装着したカソード電極上にめっき液の層状の流れを作るようにした電解めっき槽が提案されている（特開昭62-207895号公報）。さらに、その下面の入口からめっき液を導入し、その上端の、櫛歯状をした部材から前記めっき液をオーバーフローさせる、所謂カップを備えたカップ式噴流めっき装置において、前記入口の上部に簡単な構造の整流器を配し、これによってめっき液の流れを制御し、これと共に、ウェハを装着したカソード電極を回転させることにより、めっき液の流れを制御し、めっき液の流れ全体の流速を均一とするようにした装置が提案されている（特開平2-225693号公報）。

20 【0004】

【発明が解決しようとする課題】 しかしながら、前述の如きバドル式往復運動攪拌めっき装置及び電解めっき槽では、めっき液の全流路に亘って層状の流れを作ることができないという問題があった。また、前述の如きカソード電極を回転させるカップ式噴流めっき装置では、カソード電極を回転させるので、めっき液はカップの中心部から外側へ向かって均一に流れるが、めっき液はカップの中心部から外側へ向かってめっき反応をしながら流れるから、めっき液の濃度等の特性が中心部から外側へ向かうに従って変化するという問題があり、さらに、簡単な構造の整流器は、ウェハ上の微妙な流れの制御ができないため、めっき液の流れの変動に対してその組成が敏感に変動する合金めっき等には、適していないという問題があった。

【0005】 本発明は斯かる事情に鑑みてなされたものであり、回転式のカソード電極を用いてめっきを行う場合に、カソード電極に沿って流れるめっき液の濃度等の特性の変化を抑制することにより、ウェハ上に膜質、組成及び膜厚が精密に均一なめっき膜を得ることを可能とするめっき装置及び方法を提供することを目的とする。

【0006】

【課題を解決するための手段】 本発明に係る第1のめっき装置は、その一面に試料を装着して周方向に回転する円盤状のカソード電極と、前記一面と対向配置されたアノード電極とをめっき液中に配し、カソード電極とアノード電極との間に通電することにより電気めっきを行うめっき装置において、前記カソード電極の回転軸線上に配され、その内部に複数の円筒状の内壁を同軸的に設けた筒体を備え、該筒体内の空間の夫々からめっき液をカソード電極の前記一面に供給するようにしてあることを

特徴とする。

【0007】本発明に係る第2のめっき装置は、その一面に試料を装着して周方向に回転する円盤状のカソード電極と、前記一面と対向配置されたアノード電極とをめっき液中に配し、カソード電極とアノード電極との間に通電することにより電気めっきを行うめっき装置において、その内部に桶形状の内壁を同軸的に複数設けた扇状断面の筒を前記カソード電極の回転軸線の回りに連設し、隣合う筒の前記内壁の径を異ならせてある筒体を備え、該筒体内の空間の夫々からめっき液を前記カソード電極の一面に供給するようにしてあることを特徴とする。

【0008】本発明に係る第1のめっき方法は、請求項1記載のめっき装置を用いてめっきを行う方法であって、筒体内の空間のめっき液の供給量を、筒体内の内側から外側に向かうに従って多くすることを特徴とする。

【0009】本発明に係る第2のめっき方法は、請求項2記載のめっき装置を用いてめっきを行う方法であって、筒体内の空間のめっき液の供給量を、筒体内の内側から外側に向かうに従って多くすることを特徴とする。

【0010】

【作用】本発明の第1のめっき装置では、カソード電極が回転するので、その回転によって、めっき液は、中心部から外周部へ向かって一様に流れるが、この場合、めっき液は、めっき反応をしつつ流れるので、このめっき反応によってその濃度等の特性が変化するが、めっき液が中心部から外周部へ向かって流れるに従って筒体内の空間の夫々から新たなめっき液が供給されるので、カソード電極に沿って流れるめっき液の濃度等の特性は、その中心部から外周部に亘って一様となる。

【0011】本発明の第2のめっき装置では、第1のめっき装置と同様にめっき液が中心部から外周部へ向かって流れるに従って筒体内の空間の夫々から新たなめっき液が供給されるので、カソード電極に沿って流れるめっき液の濃度等の特性は、その中心部から外周部に亘って一様となり、さらに、筒体の隣合う筒にあってはその内壁の径を異ならせてあるため、隣合う筒の空間からカソード電極に供給されるめっき液は、夫々カソード電極の径方向における異なる位置に到達することとなり、カソード電極に沿って流れるめっき液の濃度等の特性は、その中心部から外周部に亘ってさらに一様となる。

【0012】前記第1のめっき装置を用いてめっきを行う場合、筒体内の外側の空間よりも内側の空間の方がめっき液の供給量が多いと、カソード電極に沿ってその中心部から外周部へ向かって流れるめっき液の流れに遮られて、筒体内の外側の空間から供給されるめっき液がカソード電極まで到達しない虞がある。本発明の第1のめっき方法では、筒体内の空間のめっき液の供給量を、筒体内の内側から外側に向かうに従って多くするので、筒体内の外側の空間から供給されるめっき液は、カソード

電極に沿って流れるめっき液に遮られることなくカソード電極に到達する。

【0013】前記第2のめっき装置を用いてめっきを行う場合、筒体内の外側の空間よりも内側の空間の方がめっき液の供給量が多いと、カソード電極に沿ってその中心部から外周部へ向かって流れるめっき液の流れに遮られて、筒体内の外側の空間から供給されるめっき液がカソード電極まで到達しない虞がある。本発明の第2のめっき方法では、筒体内の空間のめっき液の供給量を、筒体内の内側から外側に向かうに従って多くするので、筒体内の外側の空間から供給されるめっき液は、カソード電極に沿って流れるめっき液に遮られることなくカソード電極に到達する。

【0014】

【実施例】以下本発明をその実施例を示す図面に基づいて具体的に説明する。図1は本発明に係るめっき装置の構造を示す模式的縦断面図、図2はそのめっき槽の模式的横断面図である。

【0015】図中1はアクリル樹脂製のめっき槽であり、該めっき槽1は、有底円筒形の外槽11の内部に、その底部を外槽11と共有し、その上端部12aの外径が、それ以外の部分である本体部12bの外径よりも大である段付き有底円筒形の内槽12を、同軸的に備えている。内槽12の本体部12bの内部には、内槽12の本体部12b内の空間を、中心部の円柱状空間122と、その周囲の複数の円筒状空間123, 123, …とに区分けする円筒形の複数の内壁121, 121, …が同軸的に備えられている。また内壁121, 121, …の夫々の上端部は、上端へ向かうに従って所定量拡張されている。

【0016】調整槽2にはその温度、濃度及びpHが管理されためっき液が貯留されており、調整槽2内のめっき液は、その中途部にポンプPを介設してなる流出管21、ポンプPの出側の流出管21を分岐してなり、その中途に流量制御弁23, 23, …を夫々介設してなる導入管22, 22, …とを介して、円柱状空間122及び円筒状空間123, 123, …の夫々の底部から内槽12内に導入されるようになっている。また、このようにして内槽12内に導入されためっき液は、内槽12からオーバーフローして前記外槽11と内槽12との間の空間に溜まり、溜まっためっき液は、前記空間の底部から導出管24を介して、調整槽2へ環流するようになっている。

【0017】内壁121, 121, …の上部における内槽12の上端部12a内には、円盤状のカソード電極である回転電極3が配設されており、また、円柱状空間122内の下部及びその最も外側の空間を除く円筒状空間123, 123, …内の下部には夫々、その底部に固定された金属棒40, 40, …によって支持された、Ni製の網状のアノード電極4, 4, …が、前記回転電極3と平行に配設されている。前記アノード電極4, 4, …は網状であるため、その網目

5

風棒40は、直流電源6の負側端子と電気的に接続されており、アノード電極4は金属棒40を介して直流電源6の負側端子と導通されている。

【0018】前記回転電極3上面の中心部には、回転電極3の回転軸30（ステンレス製）が取付けられている。回転軸30はサーボモータ5によって軸心回転させられるようになっており、回転電極3は回転軸30の軸心回転に伴って回転するようになっている。また、回転軸30の軸長方向の中途部には、めっき槽1の上部に配されてなり、回転軸30を支承する軸受部13が設けられている。軸受部13は、円筒状の軸受ケース130の内部に、回転軸30を支承するボールベアリング131と、該ボールベアリング131の上下に2段ずつ設けられた腐食防止用のテフロンリング132、132、132、132とを備えており、回転電極3の回転時の偏心を防ぐ。

【0019】また、回転軸30の軸長方向における軸受部13とサーボモータ5との間には、直流電源6からの電流を回転軸30に流すべく直流電源6の正側端子と接続された、りん青銅製のブラシ7と、その外周がブラシ7に接触するように回転軸30を内嵌した導通用銅管8とが配設されている。これにより、回転電極3は回転軸30、導通用銅管8及びブラシ7を介して直流電源6の正側端子と導通している。回転軸30は、導通用銅管8が嵌入された部分及び回転電極3への取付け部分等の導通部分以外の部分を、腐食防止のためにテフロン皮膜にて絶縁してある。

【0020】図3は回転電極3の裏面図、図4は回転電極3の要部拡大縦断面図である。回転電極3は樹脂製の円盤状のウェハホルダ31の下面にこれと同径の導電板32を取付けてなり、導電板32は、その中心部において回転軸30と導通されている。ウェハホルダ31には、その径よりも小径の、異なる2つの同心円上に夫々、正方形の穴310、310…を4等配してあり、また、導電板32には、ウェハホルダ31に設けられた穴310、310…よりも小さい正方形の穴320、320…を前記2つの同心円上に夫々、4等配してあり、ウェハホルダ31と導電板32とは穴310、310…と穴320、320…とが重なるように取付けられている。また、導電板32の下面の中心部及び外縁部等の図中斜線にて示す箇所には、テフロン皮膜321がマスキングされており、これらの箇所はめっき液と絶縁される。そして、ウェハホルダ31の穴310、310…の夫々には、ウェハ9、9…が、穴320、320…の縁部によって支持されるように装入される。このようにウェハホルダ31の穴310、310…の夫々に装入されたウェハ9、9…は、その下面が導電板32の穴320、320…から回転電極3の下面側に露出する。また、導電板32におけるウェハ9と接触する部分及びテフロン皮膜321が施されていない部分は、めっき液に溶解しないように金めっきが施されている。

【0021】また、図4に示されるように、ウェハホルダ31における正方形の穴310の夫々の上部には、ねじ穴

6

311が形成されており、ウェハ9がウェハホルダ31の穴310に装入された場合、ウェハ9の上に緩衝用のリング312が設置され、夫々のねじ穴311に円形の蓋313が螺入されることにより、ウェハ9はウェハホルダ31の穴310内に装着されるようになっている。

【0022】以上の如く構成されためっき装置を用いてめっきを行う場合、内槽12の円柱状空間122及び円筒状空間123、123、…内にめっき液が導入され、回転電極3がサーボモータによって回転させられる。円柱状空間122及び円筒状空間123、123、…内に導入されためっき液は図5の如く流れる。図5は内槽12内のめっき液の流れを示す模式図である。図中の矢符にて示される如く、めっき液は、円柱状空間122及び円筒状空間123、123、…内において夫々下方から上方へ流れ、内壁121、121、…の上端部が拡張されているために前記上端部においてその流れの方向が内槽12の外周方向へ所定角度変化して流れる。そして、円柱状空間122及び円筒状空間123、123、…内から上方へ流れ出ためっき液は回転電極3の下面にて合流し、回転電極3の下面に沿ってその中心部から径方向外側へ向けて流れる。このように流れるめっき液は、回転電極3に装着したウェハ9に対してめっき反応し、ウェハ9にめっきが施される。

【0023】回転電極3の下面では、その回転によって、めっき液が中心部から外周部へ向かって一様に流れる。この場合、めっき液は、めっき反応をしつつ流れるが、めっき液が中心部から外周部へ向かって流れるに従って円筒状空間123、123、…の夫々から新たなめっき液がめっき液の流れに合流するので、回転電極3の下面におけるめっき液の濃度等の特性は、その中心部から外周部に亘って一様となる。

【0024】また、円柱状空間122及び円筒状空間123、123、…の夫々から回転電極3へ向けて流れるめっき液の流量は、内槽12の中心部（円柱状空間122）から外周部へ向かうに従って多くなるようにするのが最適である。これは、内槽12の中心側の空間の流量が多いと、その外周側の空間からめっき液が回転電極3へ向けて供給できなくなるからである。

【0025】次に、本発明のその他の実施例について説明する。図6は本発明のその他の実施例を示すめっき槽1の模式的横断面図である。図6に示されるめっき槽1は、その内部に複数の樋形状の内壁124、124…を同軸的に設けた扇状断面の筒120、120…を前記回転電極3の回転軸30の軸線の回りに連設し、隣合う筒120、120の内壁124、124…の径を異ならせてある筒状の内槽12を備えている。このような内槽12にあっては、隣合う筒120、120内の内壁124、124…の径を異ならせてあるため、隣合う筒120、120内の扇状断面の空間である扇状空間125、125、…から回転電極3に向けて供給されるめっき液は、夫々回転電極3の径方向における異なる位置に到達することとなり、回転電極3に沿って流れるめっき液の濃度等、

反応率の特性は、その中心部から外周部に亘ってさらに一様となる。また、このような構成の内槽12を有するめっき装置にあっても、扇状空間125, 125, …の夫々から回転電極3へ向けて流れるめっき液の流量は、内槽12の中心部から外周部へ向かうに従って多くなるようにするのが最適である。

【0026】次に、本発明に係るめっき装置及び2種類の従来のめっき装置（米国特許4102756号と同様の第1の従来装置及び回転電極3を備えるが内壁121, 121, …を備えない第2の従来装置）を使用して実際にパーマロイ合金めっきを行った結果について説明する。

【0027】まず、このめっきにおけるめっき条件について説明する。本発明のめっき装置においては、ウェハ9には下地としてパーマロイ合金皮膜がスパッタ法により予め成膜されている。アノード電極4, 4, …は、2mm厚のNi金属網板を用いた。めっき液は、金属イオンとして $\text{NiCl}_2 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$ が60g/l、 $\text{FeSO}_4 \cdot 7\text{H}_2\text{O}$ が1.5g/l添加されており、また、pH緩衝剤としてほう酸が添加してあり、3.00~3.02pHに調整されている。また、膜中の応力を緩和するために、サッカリンナトリウムを応力緩和剤として添加し、その他に電解支持剤として塩化ナトリウム、表面の濡れ特性のためにラウリル硫酸ナトリウムを界面活性剤として添加した。めっき液の温度は、バルティエ素子を用いた電子恒温装置を使用して、 $23 \pm 0.1^\circ\text{C}$ 以内に調整した。めっき液への流量は、内槽12をその中心部から外周部へ10層に分け（間隔：40mm、槽内径200mm）、中心部から0.02l/min（第1層）、0.1 l/min（第2層）、0.2 l/min（第3層）、0.4 l/min（第4層）、0.5 l/min（第5層）、0.6 l/min（第6層）、0.7 l/min（第7層）、0.9 l/min（第8層）、1.0 l/min（第9層）、1.1 l/min（第10層）とした。また、第1の従来装置及び第2の従来装置のめっき装置では、前述の如き本発明のめっき装置におけるめっき条件と略等しいめっき条件でめっきを行った。

【0028】このようなめっき条件でめっきを行った結果、第1の従来装置では、膜厚で最大7%、組成で最大1wt%の分布があった。第2の従来装置では、中心部から外周部へ向かう方向に対して膜厚で最大9%、組成で最大2wt%の分布があった。また、本発明のめっき装置では、中心部から外周部へ向かう方向に対して膜厚で最大2%、組成で最大0.3wt%の分布があった。この結果から明らかな如く本発明にあっては、従来装置よりも膜厚及び組成の均一化が図れる。

【0029】なお、本実施例においては、めっき槽1をアクリル樹脂製としたが、これに限らず、めっき槽1は、塩化ビニール樹脂、ポリプロピレン樹脂及びテフロン樹脂等、非導電性、非磁性で酸性めっき液と反応しないその他の材料を用いても良い。また、本実施例においては、アノード電極4, 4…をNi製としたが、これに

限らず、めっきされる単体金属又は合金と同じものであれば良い。

【0030】

【発明の効果】以上詳述した如く、本発明の第1のめっき装置では、めっき液が中心部から外周部へ向かって流れるに従って筒体内の空間の夫々から新たなめっき液が供給されるようになっているので、カソード電極上を流れるめっき液の濃度等の特性は、その中心部から外周部に亘って一様となり、また、本発明の第2のめっき装置では、これに加えて筒体の隣合う筒にあってはその内壁の径を異ならせてあるため、隣合う筒の空間からカソード電極に供給されるめっき液は、夫々カソード電極の径方向における異なる位置に到達することとなり、カソード電極上を流れるめっき液の濃度等の特性は、その中心部から外周部に亘ってさらに一様となる。また、本発明の第1のめっき方法及び本発明の第2のめっき方法では、筒体内の空間のめっき液の供給量を、筒体内の内側から外側に向かうに従って多くするので、筒体内の外側の空間から供給されるめっき液は、カソード電極に沿って流れるめっき液に遮られることなくカソード電極に到達するため、カソード電極上を流れるめっき液の濃度等の特性は、その中心部から外周部に亘って一様となる。このように、本発明においては、回転式のカソード電極を用いてめっきを行う場合に、カソード電極に沿って流れるめっき液の濃度、反応率等の特性が一様となることにより、ウェハ上に膜質、組成及び膜厚が精密に均一なめっき膜を得ることが可能となる等、本発明は優れた効果を奏する。

【図面の簡単な説明】

【図1】本発明に係るめっき装置の構造を示す模式的縦断面図である。

【図2】めっき槽の模式的横断面図である。

【図3】回転電極の裏面図である。

【図4】回転電極の要部拡大縦断面図である。

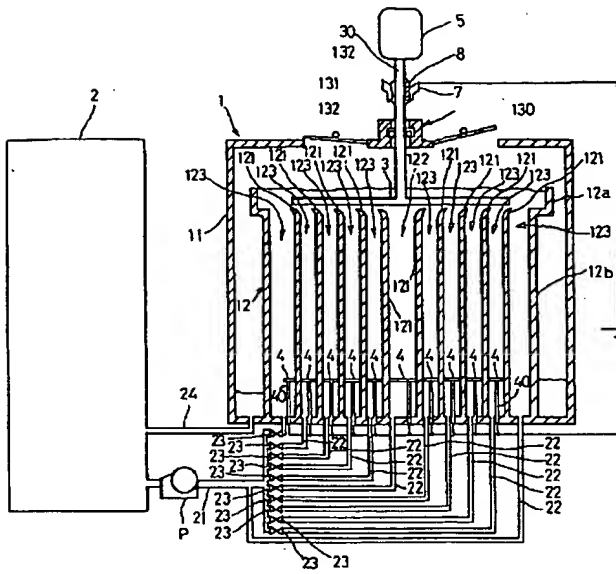
【図5】内槽内のめっき液の流れを示す模式図である。

【図6】本発明のその他の実施例を示すめっき槽の模式的横断面図である。

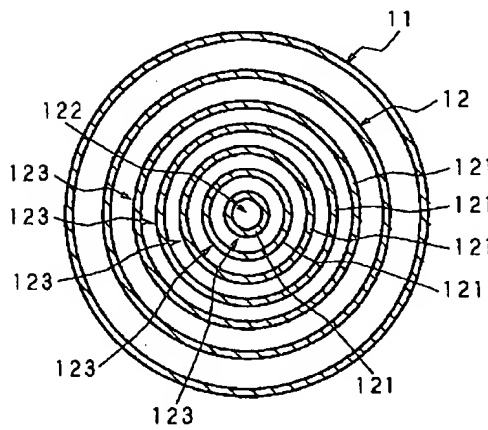
【符号の説明】

- 3 回転電極
- 4 カソード電極
- 9 ウェハ
- 12 内槽
- 30 回転軸
- 120 筒
- 121, 124 内壁
- 122 円柱状空間
- 123 円筒状空間
- 125 扇状空間

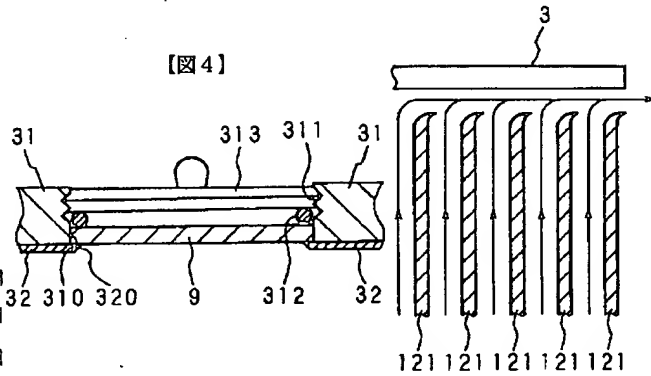
【図1】



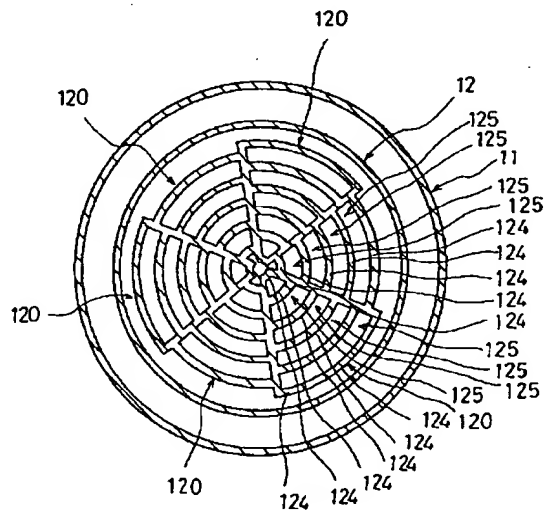
【図2】



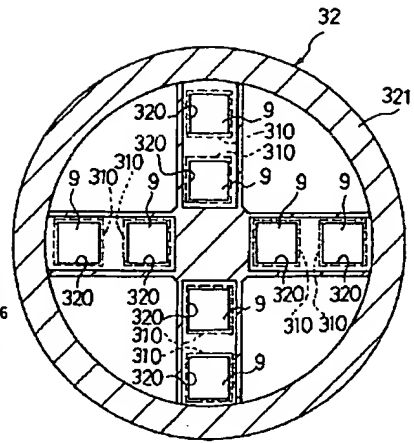
【図4】



【図6】



【図3】



【図5】